Effects of Microwave Drying on Nano-Sized YSZ Synthesized by Hydrothermal Method

Jing Zhao[1], Ying-jie Qiao[2], He-qing Zhang[3]

[1]*Harbin Engineering Universitye,Harbin,,China*

Email: *zhaojingtina@163.com*

Abstract: Nano-sized powders were synthesized by hydrothermal method with $ZrO(NO_3)_2{\cdot}2H_2O$、$Y(NO3)_3{\cdot}6H_2O$ and ammonia as raw materials. The phase composition and microstructure of the YSZ powders were investigated by X-ray diffraction, scanning electron microscope and transmission electron microscopy. The effects of microwave drying and ambient drying on the agglomeration and particle size of YSZ were analyzed. The results show that the reaction time can be reduced at some degree under microwave drying and YSZ nano-powders with less agglomeration can be acquired.

Keywords: microwave drying; hydrothermal method; YSZ; nano-powder

微波干燥对 YSZ 纳米粉体水热法合成的影响

[1]赵静，[2]乔英杰，[3]张贺新

哈尔滨工程大学 哈尔滨 中国 150001

Email: zhaojingtina@163.com

摘　要: 采用 $ZrO(NO_3)_2{\cdot}2H_2O$、$Y(NO3)_3{\cdot}6H_2O$ 和氨水为原料，用水热法制备出了纳米级 YSZ 粉体。运用 XRD、SEM 等测试手段对 YSZ 粉体的性能进行了表征和分析，研究了微波干燥和常规干燥对粉体粒径和团聚状态的影响，结果表明，微波干燥可以减少干燥时间，制备出粒度小，粒径均匀、团聚少的纳米 YSZ 粉末。

关键词: 微波干燥；水热法；氧化锆；纳米粉体

1 前言

氧化钇稳定氧化锆（YSZ）是一种非常重要的结构和功能材料，具有优良的离子导电性和机械性能，被广泛应用于制造氧气传感器和固体燃料电池等领域[1]。作为一种重要的固体电解质材料，制备出性质优良的钇稳定氧化锆粉体引起各国学者的广泛关注[2]。理想的 YSZ 粉体要具有以下特征：纯度高、可控的化学组分、粒径小且粒度分布窄、无团聚、具有球形的理想形貌等[3]。然而随着粉体粒径的减少，其颗粒的比表面积和表面能增大，极易发生团聚，因此在获得粒径小且粒度分布范围窄的粉体的同时，控制团聚体的出现，是当前迫切需要解决的问题。

本文采用水热法制备出 YSZ 超细粉末，并采用微波法进行干燥，极大缩短了干燥时间，并且可以有效地减少团聚体的形成。

2 实验过程

2.1 粉体的制备

将物质的量比一定（Y_2O_3 的含量为 3%）的 $ZrO(NO_3)_2 \cdot 2H_2O$ 和 $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ 溶于去离子水中，加入聚乙二醇（PEG）作为分散剂，配制一定锆盐浓度为 0.1mol/L 的溶液，在搅拌条件下，滴加氨水到 pH 值为 9，获得前驱体溶液；将前驱体置入具有聚四氟乙烯内衬的密闭高压斧中在 200℃进行水热反应 2 小时，

978-1-935068-41-9 © 2010 SciRes.

将所得产物经乙醇洗涤和超声分散后干燥，研磨后进行表征测试。

2.2 样品的表征

采用 PHilips X'Pert PRO SUPER X-射线衍射仪对样品粉末进行 X 射线衍射分析。采用 Hitachi S-4800 电子扫描电镜（SEM）观察样品的形貌。采用日本制造 JEOL JEM-2100 透射电子显微镜（TEM）对粒子粒径进行分析。

3 结果与讨论

图 1 为相同水热环境下常规干燥和微波干燥所获得的产物的 XRD 图谱，样品均经过 700℃热处理。由图可以看出，常规干燥和微波干燥都可以获得结晶度良好并且以四方相为主的纳米 YSZ 粉末。

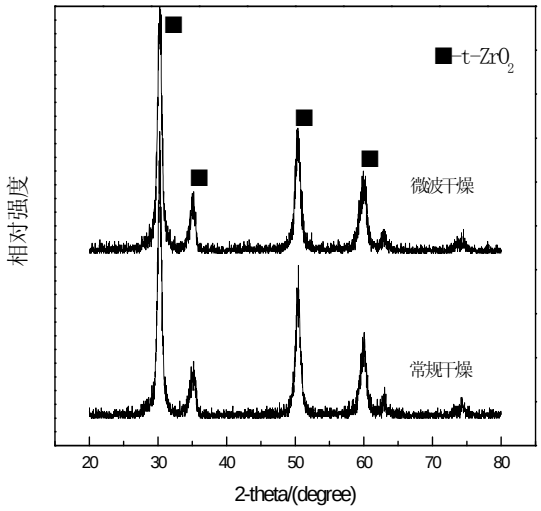


Fig 1 XRD patterns of YSZ powders prepared at different drying conditions

图 1 不同干燥方式制备的 YSZ 粉体 XRD 图

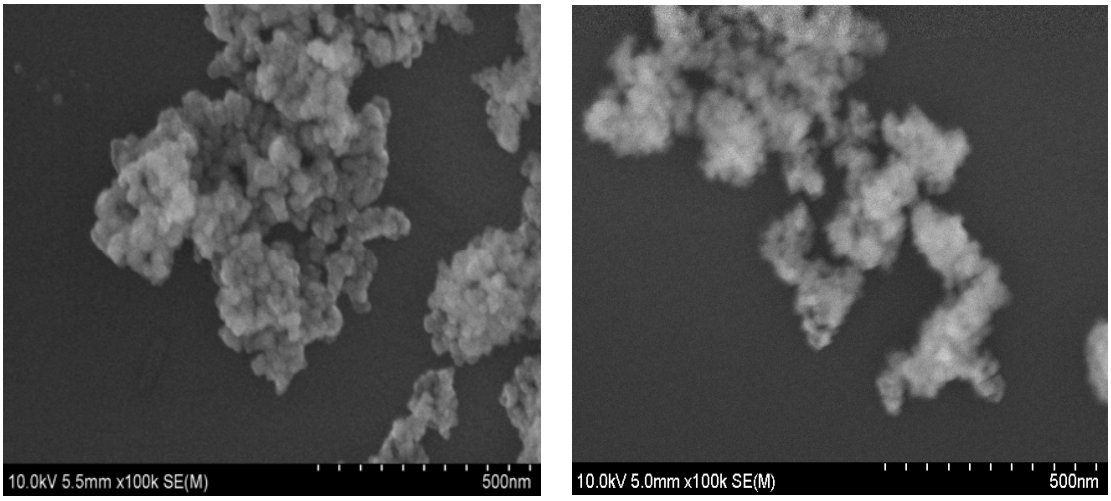
图 2 为常规干燥和微波干燥所获得的产物的 YSZ 粉体的 SEM 图，由图可以看出，常规干燥所得的颗粒大小不均，团聚比较严重，而微波干燥所获得的粉体分散性较好，粒度均匀，说明用微波干燥有利于减少粉末团聚的现象。在实验过程还发现，采用常规干燥需要若干小时才能烘干的产品，用微波干燥只需要十多分钟，因此微波干燥可以大幅度减少干燥所需时间，由于干燥时间的缩短从而大大提高了工作效率。

图 3 为常规干燥和微波干燥所获得的产物的 YSZ 粉体的 TEM 图，由图中可以看出经微波干燥所获得的粉体的粒度要比常规干燥所的的粉体粒度小，同时也可以看出常规干燥所得的粉体中存在大量硬团聚，与 SEM 所得结果一致。

粉体在干燥过程中产生团聚的原因有两方面，一方面由于粒子减小导致表面能越大，另一方面则是由于固液界面及液体表面张力的存在，胶体中的液体在挥发过程中，极易产生凝胶孔的塌陷促使颗粒聚集并长大。

微波干燥所获得的产物之所以具有分散性好，粒度小的优点，是由于微波干燥不同于常规干燥的干燥机制所引起的。微波干燥利用的是介质消耗原理，在微波干燥过程中，微波
对物料的作用在内外同时发生，由于物料表面的散热条件好于中心但是中心温度又高于表面，所以内部迅速产生蒸汽，形成压力梯度，因此温度梯度与水分排出方向一致，从而改善了水分迁移条件，克服了常规干燥的缺陷，从而更易得到分散性好，粒度均匀的颗粒[4]。

在常规干燥过程中，随着湿胶体中水分的蒸发胶体中产生了孔隙，在孔隙中出现的弯月液面形成的毛细收缩会产生表面张力，表面张力越大，毛细作用越强，越容易产生团聚现象。在普通的干燥箱里干燥样品，由于其利用的是电能辐射器发射的远红外线照射需要干燥物料的表面，使表面温度升高，随着样品表面水分的蒸发，物料内部与物料表面形成温度差，物料内部的水分需要借助扩散作用移到表面从而达到干燥的效果，由于温度梯度与水分梯度的方向相反，所以普通干燥的干燥时间长，团聚现象明显[5,6]。



a b

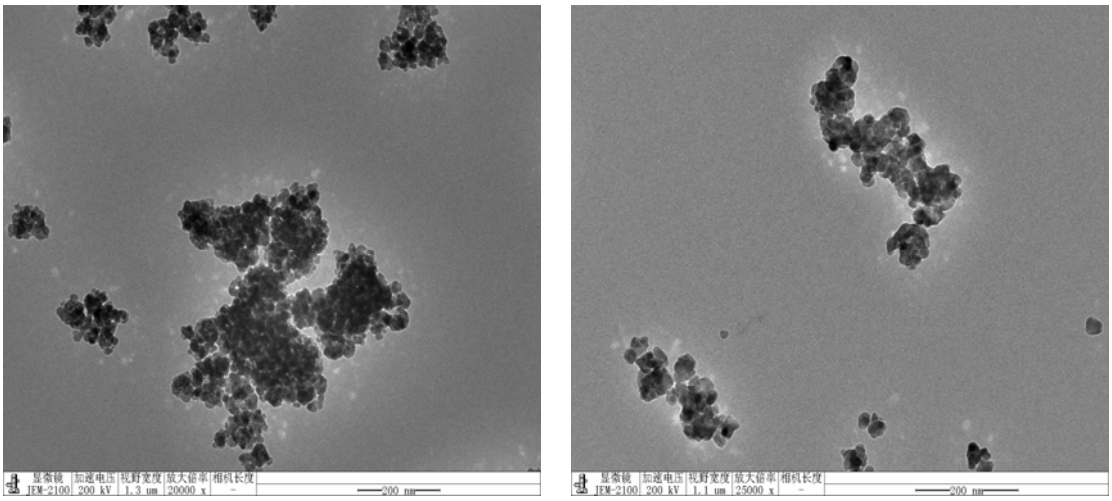
Fig 2 SEM images of YSZ powders prepared at different drying conditions

a- SEM images of YSZ powders prepared at ambient drying condition

b- SEM images of YSZ powders prepared at microwave drying condition

图 2 干燥产物 SEM 照片

a-常规干燥产物 SEM 照片 b-微波干燥产物 SEM 照片



a b

Fig 3 TEM images of YSZ powders prepared at different drying conditions

a- TEM images of YSZ powders prepared at ambient drying condition

b- TEM images of YSZ powders prepared at microwave drying condition

图 3 干燥产物 TEM 照片

a-常规干燥产物 TEM 照片 b-微波干燥产物 TEM 照片

4 结论

在水热法制备 YSZ 超细粉体的干燥过程中，不同的干燥方式对粉体的粒径及团聚状态有很大影响，与常规干燥法相比，采用微波干燥不仅可以大大缩短干

978-1-935068-41-9 © 2010 SciRes.

燥时间，还可以有效地控制粉末的团聚状态，获得粒径小且粒度均匀的 YSZ 超细粉体。

References（参考文献）

[1] Robert P, Claude M, Donats M. Hydrothermal synthesis of nanostructured zirconia materials: present state and future prospects [J]. Sensors and Actuators B: Chemical,2005,109(1):102-106.

[2] Wenyu Zheng, Chaoxi Chen, Zhoncong Chen. The nature use and development of zirconia[J].Salt Industry, 2000,32(1):18－21.
郑文裕, 陈潮钿, 陈仲丛. 二氧化锆的性质、用途及其发展方向[J]. 无机盐工业, 2000, 32(1):18－21.

[3] Sharana S C, Gokhale N M, Dayal R, et al. Synthesis, microstructure and mechanical properties of ceria stabilized tetragonal zirconia prepared by spraying drying technique[J].Bull Mater Sci,2002,25(l):15-20

[4] Jianhua Zhu. Microwave heating and use in Chemistry[J].Chemistry in University, 1998, 13(6): 1-8
朱建华. 微波介电加热及其在化学中的应用[J]. 大学化学, 1998. 13(6):1-8

[5] Yanling Xin, Fengchun Liu, Kejing Xu. The method [J].SHANDONG CERAMICS,2002,25(3):25-27.
辛延龄, 刘凤春, 许珂敬. 湿化学法制备 ZrO_2 超细粉末的干燥过程中控制粉末团聚的方法 [J].SHANDONG CERAMICS,2002,25(3):25-27.

[6] Yingguo Yang, Xiaohua Hu, Ming Pang. 2005,134(2):28-30.Drying technology in nano-powders preparation[J].Chemistry in An Hui,2005,134(2):28-30.
杨应国, 胡小华, 庞明. 干燥技术在制备纳米粉体中的应用[J]. 安徽化学, 2005, 134(2):28-30.